

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2000-188118

(P2000-188118A)

(43)公開日 平成12年7月4日(2000.7.4)

(51)Int.Cl'	識別記号	F I	テーマコード*(参考)
H 01 M 8/02		H 01 M 8/02	S 4 F 0 7 1
C 08 J 5/00	CFH	C 08 J 5/00	CFH 4 H 0 1 7
C 08 L 83/05		C 08 L 83/05	4 J 0 0 2
83/07		83/07	5 H 0 2 6
C 09 K 3/10		C 09 K 3/10	G

審査請求 未請求 請求項の数1 OL (全4頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平10-366163

(22)出願日 平成10年12月24日(1998.12.24)

(71)出願人 000006172

三菱樹脂株式会社

東京都千代田区丸の内2丁目5番2号

(72)発明者 宮川 倫成

神奈川県平塚市真土2480番地 三菱樹脂株式会社平塚工場内

(72)発明者 飯田 博文

滋賀県長浜市三ツ矢町5番8号 三菱樹脂株式会社長浜工場内

(74)代理人 100068065

弁理士 長谷川 一 (外2名)

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 固体高分子型燃料電池セパレータ用パッキング材

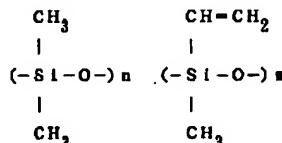
(57)【要約】

【課題】 小型の燃料電池として使用できる固体高分子型燃料電池セパレータに係り、特に、長期の使用が可能なセパレータ用パッキング材を提供する。

【解決手段】 固体高分子型燃料電池セパレータの少なくとも片側周縁部に被覆するパッキング材であって、そのパッキング材が次のA液とB液とを架橋反応させてなる付加型液状シリコーンからなり、架橋後のパルスNMR法による架橋密度が0.3~5.0%の範囲であることを特徴とする固体高分子型燃料電池セパレータ用パッキング材。

【化1】

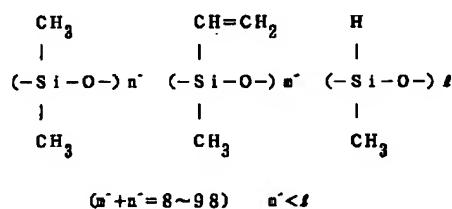
A液



(n+m=50~2,000)

【化2】

B液



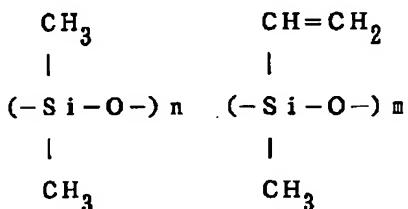
【化3】

【特許請求の範囲】

【請求項1】 固体高分子型燃料電池セパレータの少なくとも片側周縁部に被覆するパッキング材であって、そのパッキング材が次のA液とB液とを架橋反応させてなる付加型液状シリコーンからなり、架橋後のパルスNMR法による架橋密度が0.3~5.0%の範囲であることを特徴とする固体高分子型燃料電池セパレータ用パッキング材。

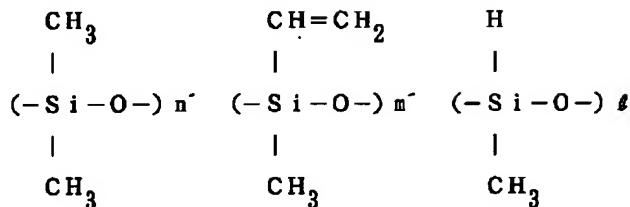
【化1】

A液



$$(m+n = 50 \sim 2,000)$$

B液



$$(m'+n' = 8 \sim 98) \quad m' < l'$$

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、小型の燃料電池として使用できる固体高分子型燃料電池セパレータに係り、特に、長期の使用が可能で成形性にも優れたセパレータ用パッキン材に関する。

【0002】

【従来の技術】最近の環境問題や資源問題に対応して燃料電池の開発が活発に行われている。特に、燃料電池としては小型、軽量化の要求から固体高分子型燃料電池が検討されている。このような電池用のセパレータとしては、より一層小型化が要求された多数のセパレータを重ね合わせて使用することから耐久性に優れ、長期間使用できるセパレータ用パッキン材が要求されている。

【0003】このようなセパレータ用パッキン材として、成形性、耐熱性、弹性に優れたシリコーンゴム製のパッキン材が主に使用されている。更にシリコーンゴムとしてはより一層成形性に優れた二液タイプの付加型溶液状シリコーン樹脂が使用されている。

【化2】

【0004】

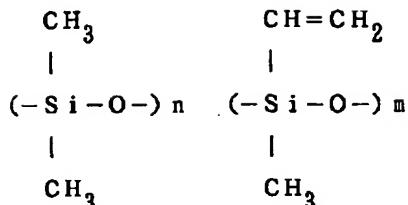
【発明が解決しようとする課題】しかしながら、二液タイプの付加型液状シリコーン樹脂では確かに成形性は優れているが、長期の弾性を維持することが出来ず、耐久性に劣るという問題があった。

【0005】

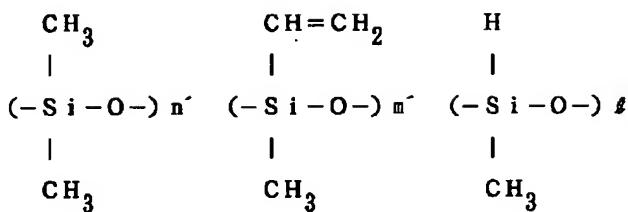
【課題を解決するための手段】本発明は上述の問題点を解決したもので、その要旨は 固体高分子型燃料電池セパレータの少なくとも片側周縁部に被覆するパッキン材であって、そのパッキン材が次のA液とB液とを架橋反応させてなる付加型液状シリコーンからなり、架橋後のパルスNMR法による架橋密度が0.3~5.0%の範囲であることを特徴とする固体高分子型燃料電池セパレータ用パッキン材である。

【化1】

A液

 $(m+n=50\sim2,000)$

B液

 $(m'+n'=8\sim98) \quad m' < l'$

【0006】

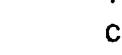
【発明の実施の形態】以下、本発明を詳しく説明する。本発明に使用される液状樹脂は、上記に示した化学構造式のA液及びB液を用い、通常この二液は成形直前に混合し、この混合時に触媒として通常白金系触媒が使用される。本発明においては、上記A液及びB液の架橋後のパルスNMR法による架橋密度が0.3~5.0%の特定の範囲において、パッキン材として優れた特性を有することを見出したものである。

【0007】架橋密度の測定法は、パルス水素核磁気共鳴装置（日本電子（株）製、パルスNMR-MU25）のソリッド・エコー法を使用し、測定温度40°C、Xax Time=40μS/Div、Sampling Point=100/Div、Scan Times=32、Pw1=2.0μS、Pi1=10μS、Rep Time=2.5Sの測定条件で得られた水素磁化の減衰曲線のうち、ワイルク係数2でカーブフィットできる成分を架橋密度とすればよい。

【0008】この架橋密度が0.3未満では架橋点が少なすぎてゴムの硬度が低下しパッキン材としてのシール効果が出ないという問題があり、また5.0を越えるものは耐久性に劣るという問題がある。

【0009】上記組成内容のシリコン樹脂を用いたパッキン材の成型方法は射出成形方法やプレス成型方法によればよくて、セパレータ本体にステンレス鋼板等の金属薄板を使用するものは、金型内に金属薄板を保持して樹脂を射出するインサート成型法がよい。

【化2】



【0010】また上記シリコーン樹脂は、粘度が10³~10⁴ポイズ(25°C)の樹脂が好適に使用できる。粘度が10³ポイズ未満のシリコーン樹脂は柔らかすぎて取り扱い難く、また10⁴ポイズを越えるシリコーン樹脂では射出成型時の流動性に欠ける傾向がある。なお、必要に応じて微粉末シリカ、ケイ藻土、高熱伝導性無機フィラー等の充填剤を添加してもよい。

【0011】成形後のシリコーン樹脂層の厚みは0.05~1.0mmの範囲が好適であり、0.05mm未満では正確な成形がしづらく又弾力効果が出にくいのでパッキン材としての具備すべき性質として多少見劣りがある。そして1.0mmを越えるものでは特に固体高分子型燃料電池のセパレータ用としての用途では小型化しやすく又コスト高となる。

【0012】さらに、成形後のシリコーン樹脂層の硬度を40~70、好ましくは50~60の範囲がよい。硬度の測定方法はJIS K 6301 スプリング式硬さ試験A形に準拠して行う。この硬度が40未満では柔らかすぎて取り扱いづらく、また70を越えると硬くなりすぎて弾力性に欠ける。

【0013】

【実施例】以下、本発明の実施例を図面に基づき説明する。A液及びB液中にビニル基を、またB液中には、A液及びB液中に含まれた合計ビニル基モル量を上まわる水素基量を含ませ、A液及びB液中の合計ビニル基モル量を架橋剂量とし、その割合の異なる原料を作成した。

【0014】表1に示した架橋剤量の異なる液状シリコーンゴムを用いて下記方法にてパッキン材を得た。原料のA液とB液を1:1(重量比)でビーカー内で攪拌混和し、2時間真空乾燥機中で真空脱泡した。その後、所定形状(100mm×100mm×12.5mm)の金型に充填し、再度2時間真空乾燥機中で真空脱泡した。次に上型で蓋をし、プレス機を用いて170°Cの加熱温度で、90Kgf/cm²の圧力で10分間加圧した。その後、200°Cで4時間乾燥(二次加硫)し得られた板状の試験片を所定の円形状試験片に打ち抜いた。得られた円形状試験片につき、応力緩和耐久試験を行い、その結果を表1に示した。

【0015】応力緩和耐久試験の試験法：直径29.0mm、厚さ12.5の円形状試験片を圧縮板に挟み、2分間で25%の圧縮歪みが生ずるまで圧縮した。圧縮歪みを与えた状態の試験片を、直ちに予め90°C、90%に保持した恒温恒湿槽に入れて30分間後に取り出した。取り出された試験片を2時間掛けて試験室の標準状

表1

	架橋剤量 (モル%)	架橋密度 (%)	応力緩和 試験結果
N O 1	0.5	0.5	◎
N O 2	1.0	4.1	◎
N O 3	1.8	6.0	×
N O 4	1.3	5.2	△

【0017】表1から本発明において規定する架橋後の架橋密度を満足する資料N O 1及び2は圧縮応力保持率は良好で長期間弹性を維持できるため長期の耐久性に優れていることが分かる。これに対して、架橋密度が本発明の範囲外の資料N O 3及び4は圧縮応力保持率が低く耐久性に劣っていることが分かる。

態の雰囲気に戻し、試験室の標準状態の雰囲気で当該試験片の圧縮応力F(0)を測定した。圧縮応力F(0)の測定後、再び試験片を90°C、90%に保持した恒温恒湿槽に入れ、150時間経過後に取り出した再度、取り出された試験片を2時間掛けて試験室の標準状態の雰囲気に戻し、試験室の標準状態の雰囲気で当該試験片の圧縮応力F(150)を測定した。測定は2回づつ行い、測定値が10%以内で一致することを確かめた。

尚、上記圧縮応力は、英國ウォーレス社製圧縮応力緩和測定装置、リラクソメータC-11型を用いて測定した。圧縮保持率は下記の式により算出した。

$$R(t) = F(150) / F(0) \times 100.$$

この値が75%以上のものを(◎)、65%以上~75%未満のものを(△)、65%未満のものを(×)とした。

【0016】

【表1】

【0018】

【発明の効果】上述したように、本発明のパッキング材は、長期間弹性を維持できて耐久性に優れており、長期の使用が可能な固体高分子型燃料電池のセパレータ用パッキング材として好適に使用できる。

フロントページの続き

(51) Int.C1.⁷
H 0 1 M 8/10

識別記号

F I
H 0 1 M 8/10

テ-マコード(参考)

Fターム(参考) 4F071 AA67 AA82 AE02 AF20 AF45
AF57 AH19 BA01 BB03 BB05
BC03
4H017 AA03 AB16 AC19 AD03 AE04
AE05
4J002 CP04X CP14W CP14X GJ02
GQ00
5H026 AA06 BB04 BB10 CX08 EE18
HH05